

STUDI LAJU KOROSI PADUAN Zr-Mo-Fe-Cr DALAM MEDIA UAP AIR JENUH PADA TEMPERATUR 250 – 300 °C

Sungkono

Pusat Teknologi Bahan Bakar Nuklir – BATAN, Serpong

ABSTRAK

STUDI LAJU KOROSI PADUAN Zr-Mo-Fe-Cr DALAM MEDIA UAP AIR JENUH PADA TEMPERATUR 250 – 300 °C. Logam paduan Zr-Mo-Fe-Cr merupakan salah satu kandidat bahan struktur elemen bakar nuklir di masa mendatang. Logam paduan tersebut harus memenuhi persyaratan sifat mekanik, fisis, kimia dan neutronik sebagai bahan struktur elemen bakar nuklir. Tujuan penelitian ini adalah mempelajari laju korosi paduan Zr-Mo-Fe-Cr dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C. Metode penelitian yang digunakan adalah metode gravimetri tidak kontinyu. Hasil pengujian menunjukkan bahwa laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah dihomogenisasi pada temperatur 750 °C selama 3 jam atau temperatur 850 °C selama 3 jam, dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C dengan waktu 2 – 16 jam, adalah relatif sama dan naik secara kubik. Akan tetapi, paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr relatif lebih tahan korosi dibandingkan paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr. Laju korosi paduan Zr-Mo-Fe-Cr dipengaruhi oleh kandungan Mo dan perlakuan homogenisasi terhadap ingot paduannya.

KATA KUNCI: Paduan Zr-Mo-Fe-Cr, Homogenisasi, Laju korosi

ABSTRACT

STUDY OF CORROSION RATE OF Zr-Mo-Fe-Cr ALLOY IN SATURATED VAPOUR MEDIUM AT TEMPERATURES 250 – 300 °C. Zr-Mo-Fe-Cr alloy represents one of the candidates for structure material of nuclear fuel element in the future. The alloy has to fulfil certain qualifications which include mechanical, physical, chemical and neutronic properties to serve as nuclear fuel element structure material. The objective of this research is to study the corrosion rate of Zr-Mo-Fe-Cr alloy in saturated vapour medium at temperatures of 250 – 300 °C. The method used in the research is gravimetry. The test results indicate that the corrosion rates of Zr-0.3%Mo-0.5%Fe-0.5%Cr and Zr-0.8%Mo-0.5%Fe-0.5%Cr alloys, which have been homogenized at temperature of 750 °C for 3 hours or at temperature of 850 °C for 3 hours, in saturated vapour medium at temperatures of 250 – 300 °C for 2 – 16 hours, are relatively equal and increase cubically. However, Zr-0.3%Mo-0.5%Fe-0.5%Cr alloy shows relative better corrosion resistance than Zr-0.8%Mo-0.5%Fe-0.5%Cr alloy. The corrosion rates of Zr-Mo-Fe-Cr alloys are influenced by the content of Mo and the homogenization treatment of the alloy ingots.

FREE TERMS: Zr-Mo-Fe-Cr alloy, Homogenization, Corrosion rate

I. PENDAHULUAN

Logam paduan Zr-Mo-Fe-Cr merupakan salah satu kandidat bahan struktur elemen bakar nuklir di masa mendatang. Logam paduan tersebut harus memenuhi persyaratan sifat mekanik, fisis, kimia dan neutronik sebagai bahan struktur elemen bakar nuklir^[1,2].

Salah satu persyaratan material yang akan digunakan sebagai bahan kelongsong elemen bakar untuk reaktor daya tipe BWR adalah mempunyai ketahanan korosi tinggi dalam lingkungan media uap air jenuh pada temperatur operasinya. Untuk mempelajari perilaku korosi material kelongsongnya dapat dilakukan simulasi korosi menggunakan alat *autoclave*^[2].

Berdasarkan hasil penelitian sebelumnya^[3,4], diketahui bahwa semakin tinggi kandungan Mo dalam paduan Zr-Mo-Fe-Cr maka kekerasannya semakin tinggi dan distribusi unsur-unsur pematunya tidak homogen. Kondisi tersebut tidak diinginkan karena akan menghasilkan tegangan sisa relatif tinggi sehingga paduan Zr-Mo-Fe-Cr getas, dan ketahanan korosinya rendah. Untuk mengatasi hal tersebut, maka paduan Zr-Mo-Fe-Cr harus dihomogenisasi pada temperatur dan waktu penahanan yang tepat agar diperoleh mikrostruktur dengan butir-butir ekuiaksial yang seragam.

Logam paduan Zr-Mo-Fe-Cr sebagai salah satu kandidat bahan struktur elemen bakar nuklir harus mempunyai ketahanan korosi tinggi, diantaranya dalam media uap air jenuh. Jika diasumsikan produk fisi padat, gas dan neutron diabaikan, maka perilaku korosi pada kelongsong elemen bakar BWR dapat disimulasikan dengan cara mempelajari perilaku korosi paduan Zr-Mo-Fe-Cr dalam media uap air jenuh menggunakan metode gravimetri^[2].

Penelitian bertujuan untuk mempelajari laju korosi paduan Zr-Mo-Fe-Cr pasca homogenisasi dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C. Hipotesis penelitian adalah kandungan Mo dan perlakuan homogenisasi diduga mempengaruhi laju korosi logam paduan Zr-Mo-Fe-Cr.

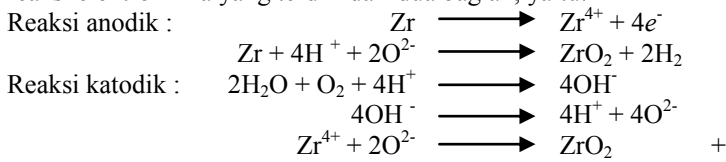
II. TEORI

2.1. Proses Homogenisasi

Proses perlakuan panas pertama kali yang dilakukan terhadap ingot paduan zirkonium *as melt* adalah proses homogenisasi. Pada prinsipnya, proses homogenisasi terhadap ingot paduan adalah proses pemanasan ingot pada temperatur setinggi mungkin dengan syarat tidak terjadi pelelehan atau tidak terjadi pertumbuhan butir yang berlebihan. Oleh karena itu proses homogenisasi ingot paduan biasanya dilakukan pada temperatur di sekitar temperatur rekristalisasi, ditahan beberapa lama pada temperatur tersebut, dan kemudian didinginkan lambat. Parameter yang menentukan pada proses homogenisasi ingot paduan adalah temperatur pemanasan dan waktu penahanan^[4].

2.2. Laju Korosi

Reaksi antara zirkonium dan paduannya dengan uap air jenuh dapat ditinjau sebagai reaksi elektrokimia yang terdiri dari dua bagian, yaitu:



Zr-Mo-Fe-Cr merupakan paduan zirkonium dengan unsur pematu utama Mo, Fe dan Cr yang larut padat di dalam sistem Zr-Mo. Sifat oksidasi dari unsur pematu Zr-Mo-Fe-Cr pada suatu temperatur dapat diramalkan dengan menggunakan diagram Ellingham. Berdasarkan

diagram Ellingham diketahui bahwa urutan tingkat reaktivitas unsur pemadu utama paduan Zr-Mo-Fe-Cr terhadap oksigen yang berada di dalam sistem oksidasi adalah zirkonium (Zr), kromium (Cr), besi (Fe) dan molibdenum (Mo)^[5].

Laju korosi paduan zirkonium dalam media air bergantung pada temperatur dan kualitas air. Sedangkan kualitas air ditentukan oleh gas terlarut O₂ dan H₂, serta pH. Cox et al., Dawson et al., Hillner et al. dan Linde^[2] mendapatkan bahwa laju korosi Zircaloy-2 dalam media air murni pada temperatur 300 °C dengan metode gravimetri mengikuti aturan pertumbuhan kubik, yaitu:

$$(\Delta W/A)^n = k \cdot t \quad (2)$$

dimana $n = 2,56 - 3,20$

ΔW = perbedaan berat spesimen sebelum dan sesudah proses korosi (mg)

A = luas permukaan spesimen (cm²)

k = tetapan laju korosi [mg/cm²)ⁿ/det]

t = waktu (detik)

Biefer et al. mendapatkan bahwa laju korosi Zircaloy-2 dalam media air pada $T = 360$ °C dan $P = 1000$ psi dengan dialiri oksigen, mengikuti aturan parabolik. Chirigos et al. mendapatkan bahwa penambahan hidrogen ke dalam media air pada $T = 340$ °C dan $P = 2500$ psi tidak berpengaruh terhadap laju korosi Zircaloy-2. Hillner et al. mendapatkan laju reaksi oksidasi Zircaloy-2 dalam media air pada $T = 360$ °C dengan LiOH semakin pekat, lebih cepat dengan faktor K/K_0 dibandingkan dalam media air murni^[2,6].

III. TATA KERJA

3.1. Bahan dan Alat

Bahan penelitian yang digunakan adalah paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi ($T = 750$ °C, $t = 3$ jam) atau ($T = 850$ °C, $t = 3$ jam), air bebas mineral, kertas amplas, resin akrifik dan pengeras, pasta intan dan bahan etsa. Sedangkan peralatan penelitian yang digunakan adalah gergaji *Accutom*, *autoclave*, peralatan metalografi, neraca Sartorius dan termokopel tipe J.

3.2. Metode

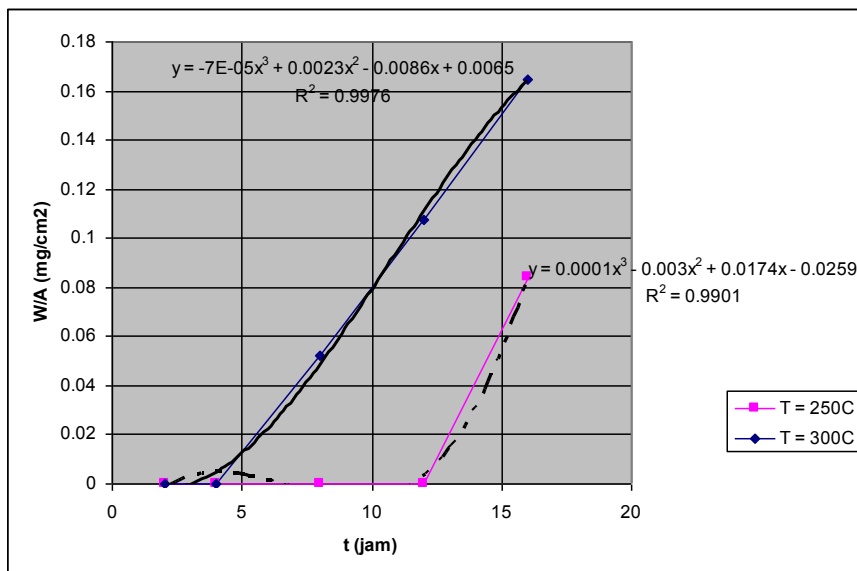
Metode penelitian yang digunakan dalam pengujian korosi logam paduan Zr-Mo-Fe-Cr adalah metode gravimetri tidak kontinyu.

3.3. Cara Kerja^[7]

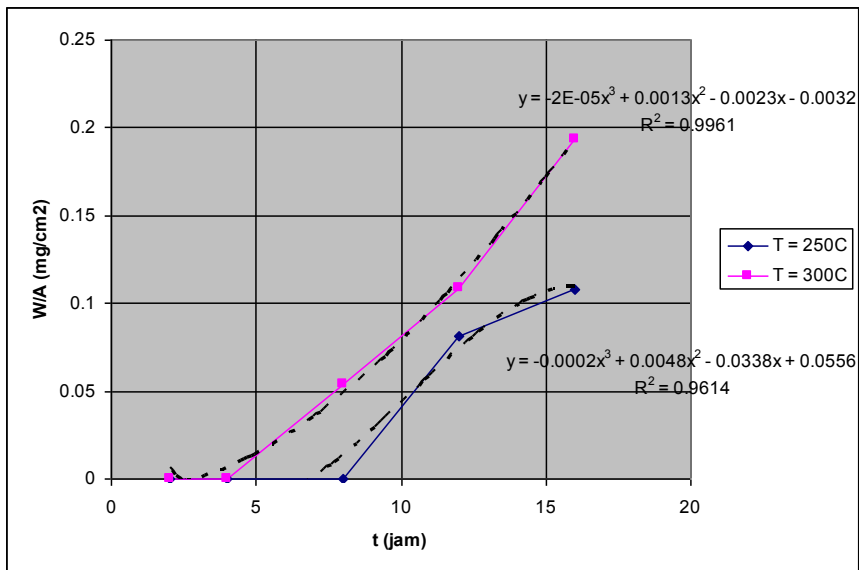
1. Permukaan spesimen uji dibersihkan dengan pembersih ultrasonik selama ± 5 menit.
2. Spesimen langkah (1) dicuci dengan aseton selama ± 5 menit, dikeringkan, kemudian berat spesimen awal ditimbang, W_0 .
3. Media korosi yakni air bebas mineral dimasukkan ke dalam *autoclave*, spesimen uji diletakkan pada penyangga spesimen dan *autoclave* dikunci rapat.
4. Sumber daya listrik dari *autoclave* dihidupkan, setelah mencapai temperatur uap air jenuh tertentu ditahan sampai waktu reaksi yang diinginkan.
5. Sampel langkah (4) dikeringkan dan beratnya ditimbang, W_1 .
6. Grafik hubungan antara perubahan berat spesimen sebelum dan sesudah uji korosi per satuan luas ($\Delta W/A$) sebagai fungsi waktu (t) dibuat pada temperatur 250 – 300 °C dan waktu 2 – 16 jam.

IV. HASIL DAN PEMBAHASAN

Gambar 1 dan 2 menunjukkan laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 dan 300 °C. Gambar 1 memperlihatkan bahwa paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi (750 °C, 3 jam) untuk temperatur 250 dan 300 °C, memiliki laju korosi serupa yaitu secara kualitatif naik secara kubik mengikuti persamaan $(\Delta W/A) = 0,0001 t^3 - 0,003 t^2 + 0,0174 t - 0,0259$ dengan $R^2 = 0,9901$ untuk $T = 250$ °C, dan $(\Delta W/A) = -7 \times 10^{-5} t^3 + 0,0023 t^2 - 0,0086 t + 0,0065$ dengan $R^2 = 0,9976$ untuk $T = 300$ °C. Gambar 2 memperlihatkan bahwa paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi (850 °C, 3 jam) untuk temperatur 250 dan 300 °C memiliki laju korosi serupa yaitu secara kualitatif naik secara kubik, mengikuti persamaan $(\Delta W/A) = -0,0002 t^3 + 0,0048 t^2 - 0,0338 t + 0,0556$ dengan $R^2 = 0,9614$ untuk $T = 250$ °C, dan $(\Delta W/A) = -2 \times 10^{-5} t^3 + 0,0013 t^2 - 0,0023 t - 0,0023$ dengan $R^2 = 0,9961$ untuk $T = 300$ °C. Laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr baik yang telah mengalami homogenisasi (750 °C, 3 jam) maupun homogenisasi (850 °C, 3 jam) dalam media uap air jenuh pada 300 °C sedikit lebih tinggi dibandingkan pada 250 °C untuk rentang waktu 4 – 16 jam.

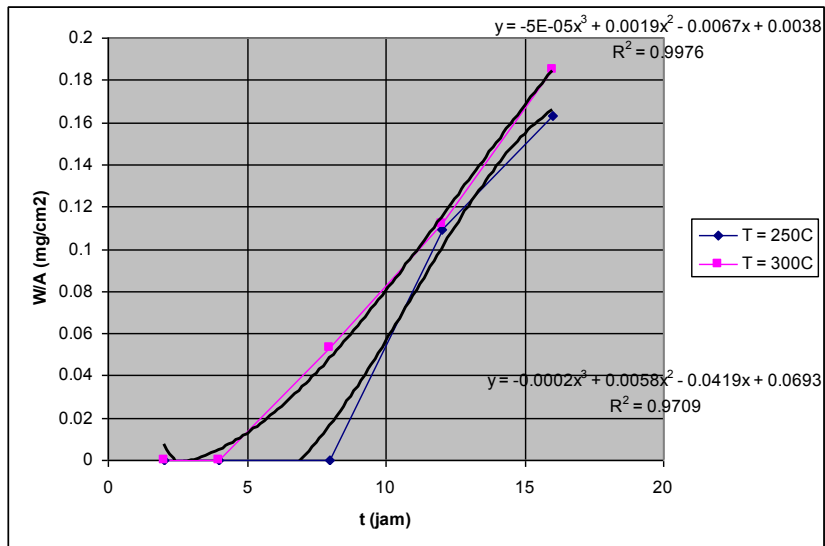


Gambar 1. Laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr (750 °C, 3 jam) dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 dan 300 °C

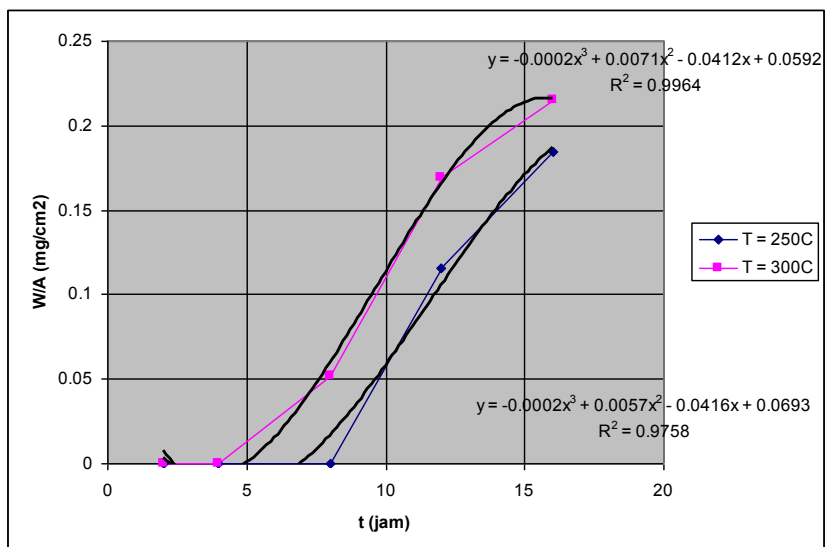


Gambar 2. Laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr (850 °C, 3 jam) dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 dan 300 °C

Gambar 3 dan 4 menunjukkan laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dalam media uap air jenuh pada rentang temperatur 250 dan 300 °C. Gambar 3 memperlihatkan bahwa paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi (750 °C, 3 jam) untuk temperatur 250 dan 300 °C memiliki laju korosi serupa yaitu secara kualitatif naik secara kubik mengikuti persamaan $(\Delta W/A) = -0,0002 t^3 + 0,0058 t^2 - 0,0419 t + 0,0693$ dengan $R^2 = 0,9709$ untuk $T = 250$ °C, dan $(\Delta W/A) = -5 \times 10^{-5} t^3 + 0,0019 t^2 - 0,0067 t + 0,0038$ dengan $R^2 = 0,9976$ untuk $T = 300$ °C. Gambar 4 memperlihatkan paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi (850 °C, 3 jam) untuk temperatur 250 dan 300 °C dengan laju korosinya serupa yaitu secara kualitatif naik secara kubik mengikuti persamaan $(\Delta W/A) = -0,0002 t^3 + 0,0057 t^2 - 0,0416 t + 0,0693$ dengan $R^2 = 0,9758$ untuk $T = 250$ °C, dan $(\Delta W/A) = -0,0002 t^3 + 0,0007 t^2 - 0,0412 t + 0,0592$ dengan $R^2 = 0,9961$ untuk $T = 300$ °C. Laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr baik yang telah mengalami homogenisasi (750 °C, 3 jam) maupun homogenisasi (850 °C, 3 jam) dalam media uap air jenuh pada 300 °C sedikit lebih tinggi dibandingkan pada 250 °C untuk rentang waktu 4 – 16 jam. Disamping itu, laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi (850 °C, 3 jam) sedikit lebih tinggi dibandingkan yang mengalami homogenisasi (750 °C, 3 jam) untuk temperatur 250 – 300 °C dan waktu 4 – 16 jam.



Gambar 3. Laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr (750 °C, 3 jam) dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 dan 300 °C

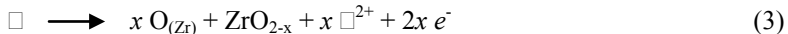


Gambar 4. Laju korosi paduan Zr-0,8Mo-0,5Fe-0,5Cr (850 °C, 3 jam) dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 dan 300 °C

Berdasarkan gambar 1, 2, 3 dan 4, laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C

dikendalikan oleh difusi ion-ion logam atau ion-ion oksigen melalui lapisan oksida. Laju difusi ion-ion tersebut merupakan fungsi temperatur, sehingga semakin tinggi temperatur medium korosinya maka semakin tinggi pula laju difusinya.

Laju proses pembentukan ZrO_2 ditentukan oleh difusi kekosongan anion. Mekanisme korosi yang dikendalikan difusi kekosongan anion mengikuti model Pilling-Bedworth. Kekosongan anion terjadi akibat proses difusi ion oksigen dari kedudukannya dalam kisi oksida ke kedudukan interstisi logam dasar. Proses difusi tersebut dapat dituliskan sebagai berikut :



dimana \square = keadaan referensi ion oksigen pada kedudukan normal dalam kisi ZrO_2
 $O_{(Zr)}$ = oksigen terlarut interstisi dalam kisi Zr
 \square^{2+} = kekosongan anion dalam ZrO_2 dengan muatan +2
 e^- = elektron bebas

Kekosongan anion dan elektron bebas dihasilkan pada antar muka logam-oksida yang kemudian berdifusi ke arah antar muka oksida-air^[5,6].

Disamping itu, laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami homogenisasi (850 °C, 3 jam) sedikit lebih tinggi dibandingkan yang mengalami homogenisasi (750 °C, 3 jam) untuk temperatur 250 – 300 °C. Kecenderungan serupa terjadi pada laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami perlakuan sama. Hal ini disebabkan baik paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr maupun paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang dihomogenisasi (850 °C, 3 jam) mengalami *overheating*, sehingga terjadi proses rekristalisasi. Butir ekuiaksial di beberapa bagian mempunyai ukuran lebih besar dibandingkan butir ekuiaksial di bagian lain dalam paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr atau Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr. Adanya perbedaan ukuran butir tersebut menyebabkan timbulnya tegangan sisa sehingga memudahkan difusi kekosongan anion^[4]. Kondisi tersebut tidak diinginkan karena akan menurunkan ketahanan korosi dari paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr atau paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah dihomogenisasi (850 °C, 3 jam).

Kurva laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr sebangun dengan kurva laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang mengalami perlakuan yang sama. Dalam rentang temperatur 250 – 300 °C, laju korosi paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr lebih tinggi dibandingkan paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr. Hal ini disebabkan semakin tinggi kandungan Mo yang dipadukan maka semakin sulit proses homogenisasinya. Dengan demikian bentuk dan ukuran butir dalam mikrostruktur paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr kurang seragam dibandingkan paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr. Kondisi tersebut memungkinkan adanya tegangan sisa yang lebih tinggi, sehingga memudahkan difusi kekosongan anion melalui lapisan oksida^[5,6].

Berdasarkan Gambar 1, 2, 3 dan 4 dapat diketahui bahwa laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C dipengaruhi oleh kandungan Mo dan perlakuan homogenisasi terhadap ingot paduan sebelumnya. Dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C, paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr relatif lebih tahan korosi dibandingkan dengan paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami perlakuan korosi serupa.

V. KESIMPULAN

Laju korosi paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C dan waktu 2 – 16 jam mengikuti aturan kubik. Paduan Zr-0,3%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr relatif lebih tahan korosi dibandingkan dengan paduan Zr-0,8%Mo-0,5%Fe-0,5%Cr yang telah mengalami perlakuan korosi serupa dalam media uap air jenuh. Laju korosi paduan Zr-Mo-Fe-Cr dalam media uap air jenuh pada temperatur 250 – 300 °C dan waktu 2 – 16 jam dipengaruhi oleh kandungan Mo, dan perlakuan homogenisasi terhadap ingot paduannya.

VI. UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis mengucapkan terima kasih kepada Slamet Pribadi A.Md. dan Joko Kisworo (PTBN-BATAN) yang telah membantu preparasi sampel, serta Ari Nugroho (UNAS) yang telah membantu dalam pengujian korosi paduan Zr-Mo-Fe-Cr.

VII. DAFTAR PUSTAKA

1. FONTANA, M.G., “Corrosion Engineering”, McGraw-Hill, New York, 1987, pp.507-518.
2. COHEN, P., “Water Coolant Technology of Power Reactors”, American Nuclear Society, Illinois, 1985.
3. SUNGKONO, “Studi Pengaruh Penambahan Kandungan Mo terhadap Kekuatan Tarik, Kekerasan dan Ketahanan Korosi Paduan Zr-Mo-Fe-Cr”, Buletin URANIA, No.40, Oktober, 2004, hal.15-19.
4. SUNGKONO, “Pengaruh Parameter Proses Homogenisasi terhadap Mikrostruktur dan Kekerasan Paduan Zr-Mo-Fe-Cr”, Jurnal Ilmiah Konduktor Padat, Vol.5, Edisi Khusus, 2004, hal.33-37.
5. SUNGKONO, ISFANDI, SAYUDI, dan ERIC JOHNERI, “Kinetika Oksidasi Zircaloy-2 dalam Media Uap Air Jenuh pada Temperatur 250 – 300 °C dan pH 5 – 9”, Prosiding Seminar Ilmiah Daur Bahan Bakar Nuklir II, Jakarta, 19-20 Nopember, 1996, hal.147-153.
6. COX, B., “Mechanisms of Zirconium Alloy Corrosion in Nuclear Reactors”, J. of Corrosion Science and Engineering, Vol.4, Paper 14, July, 2003.
7. Annual Book of ASTM Standards, “Aqueous Corrosion Testing of Samples of Zirconium and Zirconium Alloys”, ASTM G2-74, USA, 1993.